(19)日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11)特許出顧公開番号 特開2000-252076 (P2000-252076A)

(43)公開日 平成12年9月14日(2000.9.14)

(51) Int.Cl. ⁷	識別記号	FΙ	テーマユード(参考)	
H 0 5 B 33/22		H 0 5 B 33/22	B 3K007	
33/10		33/10		
33/14		33/14	Α	
# C 0 9 K 11/06	680	C 0 9 K 11/06	680	
		審查請求 未請求	請求項の数14 OL (全 20 頁)	
(21)出願番号	特願平11-54980	(71)出顧人 0000053	000005326	
		本田技術	所工業株式会社	
(22)出顧日	平成11年3月3日(1999.3.3)	東京都港区南青山二丁目1番1号		
		(72)発明者 石井	18	
	•	埼玉県	陜山市新狭山1丁目10番地1 ホン	
		ダエン	ジニアリング株式会社内	
		(72)発明者 柘植 和	態高	
		埼玉県	陜山市新狭山1丁目10番地1 ホン	
		ダエン	ジニアリング株式会社内	
		(74)代理人 1001028	364	
	·	弁理士	工藤 実 (外1名)	
			最終質に続く	

(54) 【発明の名称】 有機エレクトロルミネッセンス素子とその製造方法

(57)【要約】

【課題】 湿式法を用いても、下層有機膜を損傷することなく下層有機膜の上に、電子輸送性高分子を含む上層 有機膜を形成することが可能な有機エレクトロルミネッセンス素子を提供する。

【解決手段】 陽極として作用する陽極層と、陰極として作用する陰極層と、ここで、陽極層と陰極層のうち少なくとも1方が透明な材料からなり、陽極層と陰極層との間に、正孔輸送層と電子輸送層とを有し、正孔輸送層は、正孔輸送性有機物を含み、電子輸送層は、湿式法によって形成され、電子輸送性高分子を含み、ここで、前記電子輸送性高分子は、その繰り返し単位中にアルキル基、またはアルコキシル基からなる側鎖を1以上5以下含む有機エレクトロルミネッセンス素子を提供する。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 陽極として作用する陽極層と、陰極とし て作用する陰極層と、ここで、前記陽極層と前記陰極層 のうち少なくとも1方が透明な材料からなり、

前記陽極層と前記陰極層との間に、正孔輸送層と電子輸 送層とを有し、

前記正孔輸送層は、正孔輸送性有機物を含み、

前記電子輸送層は、湿式法によって形成され、電子輸送 性高分子を含み、ここで、前記電子輸送性高分子は、繰 り返し単位中にアルキル基、またはアルコキシル基から 10 なる側鎖を1以上5以下含む、

有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項2】 前記電子輸送性高分子は、化学式[化 1] または [化12] から [化14] で示される高分子 化合物のいずれかからなる、

【化1】

(化学式[化1]中、Yで示される化学構造は、構造な し、または下記に示す[化2]、[化3]、のいずれか からなり、

【化2】

【化3】

Xで示される化学構造は、下記に示す [化4]、[化 5]、[化6]、[化7]、[化8]、[化9]、[化 10]、[化11] のうちいずれかからなり、

【化4】

$$-0-$$

【化5】

2

【化7】

【化8】

【化9】

【化10】

【化11】

20

Rはアルキル基を示し、

R1~R16の各々は、それぞれ独立に、水素、アルキ ル基、アルコキシル基、フッ素、塩素、アリール基を示 し、あるいは/および隣接するRn(nは1以上16以 下のいずれかからなる整数) において、芳香環が縮合し ても良く、さらに上記アリール基、縮合芳香環の置換基 30 として、アルキル基、アルコキシル基、フッ素、塩素、 アリール基を有しても良く、上記アルキル基、アルコキ シル基の合計が1~5個からなる)

【化12】

(化学式[化12]中、Yで示される化学構造は、構造 なし、または下記に示すの[化13]、[化14]、の いずれかからなり、

【化13】

【化6】

Xで示される化学構造は、上記の [化4]、 [化5]、 [化6]、 [化7]、 [化8]、 [化9]、 [化10]、 [化11] のうちいずれかからなり、 Rはアルキル基を示し、

R1~R21の各々は、それぞれ独立に、水素、アルキル基、アルコキシル基、フッ素、塩素、アリール基を示し、あるいは/および隣接するRn(nは1以上21以下のいずれかからなる整数)において、芳香環が縮合しても良く、さらに上記アリール基、縮合芳香環の置換基として、アルキル基、アルコキシル基、フッ素、塩素、アリール基を有しても良く、上記アルキル基、アルコキシル基の合計が1~5個からなる)

【化1.5】

(化学式 [化15] 中、R1~R17の各々は、それぞれ独立に、水素、アルキル基、アルコキシル基、フッ素、塩素、アリール基を示し、あるいは/および隣接するRn(nは1以上17以下のいずれかからなる整数)において、芳香環が縮合しても良く、さらに上記アリール基、縮合芳香環の置換基として、アルキル基、アルコキシル基、フッ素、塩素、アリール基を有しても良く、上記アルキル基、アルコキシル基の合計が1~5個からなる)

【化16】

(化学式 [化16] 中、R1~R17の各々は、それぞれ独立に、水素、アルキル基、アルコキシル基、フッ素、塩素、アリール基を示し、あるいは/および隣接するRn(nは1以上17以下のいずれかからなる整数)において、芳香環が縮合しても良く、さらに上記アリール基、縮合芳香環の置換基として、アルキル基、アルコキシル基、フッ素、塩素、アリール基を有しても良く、上記アルキル基、アルコキシル基の合計が1~5個からなる)

請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。 【請求項3】 前記電子輸送層は、電子輸送性低分子を さらに含む、

請求項1または2に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項4】 前記正孔輸送層と前記電子輸送層の少な 30 くとも1方に蛍光物質を含む、

請求項1から3のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項5】 前記正孔輸送性有機物と電子輸送性有機物の少なくとも1方が蛍光物質であり、ここで、前記電子輸送性有機物は、前記電子輸送層に含まれている前記電子輸送性高分子または/かつ前記電子輸送性低分子を示す、

請求項1から4のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

40 【請求項6】 基板上に陽極として作用する陽極層を形成する陽極層形成ステップと、

前記陽極層の上に、正孔輸送性有機物を含む正孔輸送層 を形成する正孔輸送層形成ステップと、

前記正孔輸送層の上に、溶媒中に電子輸送性高分子を溶解または分散した溶液を用いた湿式法によって電子輸送層を形成する電子輸送層形成ステップと、ここで、前記電子輸送性高分子は、繰り返し単位中にアルキル基、またはアルコキシル基からなる側鎖を1以上5以下含み、前記電子輸送層の上に、陰極として作用する陰極層を形

50 成する陰極層形成ステップと、

ここで、前記陽極層と前記陰極層のうち少なくとも1方 が透明な材料からなる、

有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。

【請求項7】 前記電子輸送層形成ステップは、

前記正孔輸送層の上に、溶媒中に化学式 [化1]、[化12]、[化15]、または [化16]で示される高分子化合物のいずれかを溶解した溶液を用いた湿式法によって電子輸送層を形成するステップからなる、

有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。

【請求項8】 前記溶媒は、

前記溶媒の溶解度パラメーターが前記正孔輸送性有機物 の溶解度パラメーターの可溶範囲外であって、かつ、前 記溶媒への室温における水の溶解度が2重量パーセント 以下であり、ここで、前記溶解度パラメーターは数式 (1)で表される、

 $SP = \{ (\Delta H - RT) / V \}^{1/2} \dots (1)$

(数式 (1) において、SPは溶解度パラメーター (単位: cal/cm^3) 1/2であり、 Δ Hは溶媒に対する蒸発熱

(単位:cal/mol)であり、Rは気体定数(単位:cal/(mol・K))であり、Tは溶媒の絶対温度(単位:K)であり、Vは溶媒のモル体積(単位:cm³/mol)である)請求項6または7に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。

【請求項9】 前記溶媒は、室温における水の溶解度が 1 重量パーセント以下である、

請求項8に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子の 製造方法。

【請求項10】 前記溶媒は、ケトン、エステル、エーテル、アルコール、カルボン酸、アミン、アルデヒド類よりも水素結合の弱い有機物からなる、

請求項8または9に記載の有機エレクトロルミネッセン ス素子の製造方法。

【請求項11】 前記溶媒は、炭化水素、ハロゲン化炭化水素、ニトロ化炭化水素、ニトリル類のうち、少なくとも1種類からなることを特徴とする、

請求項8または9に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。

【請求項12】 前記電子輸送層は、電子輸送性低分子をさらに含むことを特徴とする請求項6から11のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。

【請求項13】 前記正孔輸送層と前記電子輸送層の少なくとも1方に蛍光物質を含むことを特徴とする請求項6から12のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。

【請求項14】 前記正孔輸送性有機物と電子輸送性有機物の少なくとも1方が蛍光物質であり、ここで、前記電子輸送性有機物は、前記電子輸送層に含まれている前記電子輸送性高分子または/かつ前記電子輸送性低分子を示す、

請求項6から13のいずれかに記載の有機エレクトロル ミネッセンス素子の製造方法。

【発明の詳細な説明】

[0001]

【発明の属する技術分野】本発明は、有機エレクトロルミネッセンス素子に関し、特に簡易な構造を有しながら発光効率の高い有機エレクトロルミネッセンス素子と、その有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法に関する。

10 [0002]

【従来の技術】現在種々の発光素子が使用されているが、面発光が可能で、大面積の発光素子の製造可能性から有機エレクトロルミネッセンス素子が注目されている。

【0003】有機エレクトロルミネッセンス素子は、その特徴から、自動車、自転車等の方向指示機やテールランプなど、パーソナルコンピューター、ファミリーコンピューターなどのディスプレイ、液晶表示装置のバックライト、玩具用発光素子、道路工事用夜間表示灯などの20 用途に用いられることが予想される。

【0004】従来、有機エレクトロルミネッセンス素子では、陽極/発光層/陰極の構造の単層有機エレクトロルミネッセンス素子が知られている。陰極からは電子が発光層に注入され、陽極からは正孔が発光層に注入される。注入された電子と正孔が、発光層内で再結合するときに発光が行われる。

【0005】その後、種々の構造を持った有機エレクトロルミネッセンス素子が開発されている。例えば、陽極/正孔輸送層/発光層/電子輸送層/陰極からなる多層 30 積層構造である。正孔輸送層/発光層/電子輸送層は薄膜として形成されている。

【0006】正孔輸送層は陽極から注入される正孔を発 光層まで輸送するための層であり、電子輸送層は陰極か ら注入される電子を発光層まで輸送するための層であ る。発光層は正孔輸送層と陰極の間に設けられ、発光材 として蛍光物質を含んでいる。発光層は高い発光量子効 率を有する蛍光物質単体、あるいはこれらが低分子ある いは高分子化合物中に分散させられた形で形成されてい る。発光材は、色素レーザー用の色素、蛍光増白剤、あ るいは紫外線照射により蛍光を示す蛍光物質の中から任 意に用いることができる。

【0007】上記構造以外に、例えば正孔注入層、電子 注入層、正孔阻止層が設けられた有機エレクトロルミネ ッセンス素子も知られている。

【0008】例えば、特開平3-137186号公報には、陽極/正孔注入輸送層/発光層/正孔阻止層/陰極からなる多層積層構造の有機エレクトロルミネッセンス素子が開示されている。正孔阻止層は、発光層と陰極の間に設けられる。正孔阻止層が設けられない場合には、発光に客点することがない正孔は発光層内を活躍しては、

50 発光に寄与することがない正孔は発光層内を通過してゆ

く。正孔阻止層はそのような正孔を発光層内にとじ込 め、発光に寄与させるために使用される。この結果、髙 い発光効率が得られる。

【0009】電子注入層は、発光層と陰極の間あるいは 正孔阻止層と陰極の間に設けられ、陰極からの電子の注 入を容易にする。正孔注入層は、発光層と陽極の間に設 けられ陽極からの正孔の注入を容易にする。

【0010】従来の有機エレクトロルミネッセンス素子 の製造において、各有機層は蒸着法により形成されてい た。しかしながら、蒸着法で大面積の有機エレクトロル ミネッセンス素子を生産することは生産効率の点で問題 がある。

【0011】そこで、有機層が浸漬塗工法により形成さ れる有機エレクトロルミネッセンス案子が特開平3-1 37186号公報に開示されている。また、特開平4-2096号公報には、有機層が塗布により形成されてい る。これにより、生産効率を改善できる可能性がでてき た。

【0012】ところが、十分な性能をもつ有機エレクト ロルミネッセンス素子を得るには、厳しく管理された成。20 供することにある。 膜条件の下で、数十nmの有機薄膜を塗布形成する必要 がある。特開平3-137186号公報、また、特開平 4-2096号公報に述べられているように、有機層の 上に更に有機層を塗布形成する際には、下層が実質的に 溶解あるいは溶出しないことが大切である。しかしなが ら、どのような条件で成膜すれば下層を実質的に溶解あ るいは溶出することなく上層を塗布形成することができ るかは上記引例には何らの記載もない。

[0013]

【発明が解決しようとする課題】量子効率の点から積層 構造と単層構造を比較すると、積層構造を有する有機工 レクトロルミネッセンス素子の方が発光効率が高く優れ ている。これは積層構造では界面でキャリアがブッロク される事によりキャリアの再結合確率が高まり、また再 結合部が界面に集約され、金属電極による一重項励起子 の消光が防げることによる。よって積層構造を有する有 機エレクトロルミネッセンス素子では単層構造の有機エ レクトロルミネッセンス素子と比べて少ないパワーで同 じ発光を得ることができる。

【0014】そのような積層構造を実現するために従来 の有機エレクトロルミネッセンス素子では蒸着法が用い られている。しかしながら、蒸着法では大規模な素子を 実現するのは困難である。また、生産効率も悪い。そこ で、例えば塗布法のような湿式法により有機膜を形成す ることが考えられた。この方法では、大規模な素子を容 易に実現でき、また生産効率もよい。

【0015】しかしながら、下層の有機膜を形成した後 に、上層を湿式法により形成する場合、下層の有機膜が 溶け、界面での材料の濃度バランスがくずれ、キャリア をプロックする効果が減少するという問題がある。また

下層の有機膜の膜厚は薄いので、下層にピンホール等が 形成され、良質な有機エレクトロルミネッセンス素子を 得ることが困難であるという問題があった。また、生産 性の高い湿式法を用いて形成された有機エレクトロルミ ネッセンス素子において、上層の電子輸送層には、耐久 性に優れた電子輸送性高分子の使用が望まれる。しかし ながら、電子輸送性高分子は溶媒の溶解度パラメーター に対する可溶範囲が狭く、下層の正孔輸送層を溶解しな い溶媒に対して難溶性を示す。このために、発光効率の 高い積層構造素子に電子輸送性高分子を用いることは難 しかった。

【0016】本発明は、上記問題を解決するためになさ れたものである。従って、本発明の目的は、湿式法を用 いても、下層有機膜を損傷することなく下層有機膜の上 に、電子輸送性高分子を含む上層有機膜を形成すること が可能な有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法 を提供することにある。

【0017】また、本発明の他の目的は、簡易な構造で 発光効率のよい有機エレクトロルミネッセンス素子を提

[0018]

【課題を解決するための手段】上記課題を解決するため に、発明者は、有機エレクトロルミネッセンス素子に用 いられる、従来知られた電子輸送性高分子の繰り返し単 位中に、1以上5以下のアルキル基、またはアルコキシ ル基を含む高分子化合物が、電子輸送性をもち、電子輸 送層を形成する湿式法に用いられ、正孔輸送層に含まれ る有機物を溶解しない溶媒に対して可溶性があることを 発見した。

【0019】上記の高分子化合物の例として、一般式 [化1]、[化12]、[化15]、[化16]で表さ れる各化合物があげられる。

【0020】また、上記課題を解決するために、陽極と して作用する陽極層と、陰極として作用する陰極層と、 ここで、陽極層と陰極層のうち少なくとも1方が透明な 材料からなり、陽極層と陰極層との間に、正孔輸送層と 電子輸送層とを有し、正孔輸送層は、正孔輸送性有機物 を含み、電子輸送層は、湿式法によって形成され、電子 輸送性髙分子を含み、ここで、電子輸送性髙分子は、繰 り返し単位中にアルキル基、またはアルコキシル基から なる側鎖を1以上5以下含む有機エレクトロルミネッセ ンス素子を提供する。

【0021】さらに、上記の有機エレクトロルミネッセ ンス素子において、電子輸送性高分子は、化学式 [化 1] または [化12] から [化14] で示される高分子 化合物のいずれかからなることを特徴とすることが可能

【0022】さらにまた、上記の有機エレクトロルミネ ッセンス素子において、電子輸送層は、電子輸送性低分 50 子をさらに含むことを特徴とすることが可能である。

【0023】さらに他に、上記の有機エレクトロルミネッセンス素子において、正孔輸送層と電子輸送層の少なくとも1方に蛍光物質を含むことを特徴とすることが可能である。

【0024】また、上記の有機エレクトロルミネッセンス素子において、正孔輸送性有機物と電子輸送性有機物の少なくとも1方が蛍光物質であり、ここで、電子輸送性有機物は、電子輸送層に含まれている電子輸送性高分子または/かつ電子輸送性低分子を示すことを特徴とすることが可能である。

【0025】また更に、上記の有機エレクトロルミネッセンス素子において、正孔輸送性有機物がポリ (Nービニルカルバゾール) からなることを特徴とすることが可能である。

【0026】他に、上記課題を解決するために、基板上に陽極として作用する陽極層を形成する陽極層形成ステップと、陽極層の上に、正孔輸送性有機物を含む正孔輸送層を形成する正孔輸送層形成ステップと、正孔輸送層の上に、溶媒中に電子輸送性高分子を溶解または分散した溶液を用いた湿式法によって電子輸送層を形成する電 20子輸送層形成ステップと、ここで、電子輸送性高分子は、繰り返し単位中にアルキル基、またはアルコキシル基からなる側鎖を1以上5以下含み、電子輸送層の上に、陰極として作用する陰極層を形成する陰極層形成ステップと、ここで、陽極層と陰極層のうち少なくとも1方が透明な材料からなる有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法を提供する。

【0027】また、上記の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法において、電子輸送層形成ステップは、正孔輸送層の上に、溶媒中に化学式 [化1]、[化12]、[化15]、または[化16]で示される高分子化合物のいずれかを溶解または分散した溶液を用いた湿式法によって電子輸送層を形成するステップからなることを特徴とすることが可能である。

【0028】また他に、上記の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法において、溶媒は、溶媒の溶解度パラメーターが正孔輸送性有機物の溶解度パラメーターの可溶範囲外であって、かつ、溶媒への室温における水の溶解度が2重量パーセント以下であり、ここで、溶解度パラメーターは数式(1)で表される、

 $SP = \{ (\Delta H - RT) / V \}^{1/2}$ (1)

(数式 (1) において、SPは溶解度パラメーター(単位: cal/cm^3) $^{1/2}$ であり、 Δ Hは溶媒に対する蒸発熱(単位:cal/mol) であり、Rは気体定数(単位: $cal/(mol \cdot K)$)であり、Tは溶媒の絶対温度(単位:K)であり、Vは溶媒のモル体積(単位: cm^3/mol)である)ことを特徴とすることが可能である。

【0029】また更に、上記の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法において、溶媒は、室温における水の溶解度が1重量パーセント以下であることを特徴と

することが可能である。

【0030】さらに、上記の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法において、溶媒は、ケトン、エステル、エーテル、アルコール、カルボン酸、アミン、アルデヒド類よりも水素結合の弱い有機物からなることを特徴とすることが可能である。

10

【0031】さらにまた、上記の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法において、溶媒は、炭化水素、ハロゲン化炭化水素、ニトロ化炭化水素、ニトリル類のうち、少なくとも1種類からなることを特徴とすることを特徴とすることが可能である。

【0032】さらに他に、上記の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法において、電子輸送層は、電子輸送性低分子をさらに含むことを特徴とすることが可能である。

【0033】加えて、上記の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法において、正孔輸送層と電子輸送層の少なくとも1方に蛍光物質を含むことを特徴とすることが可能である。

「【0034】さらに加えて、上記の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法において、正孔輸送性有機物と電子輸送性有機物の少なくとも1方が蛍光物質であり、ここで、電子輸送性有機物は、電子輸送層に含まれている電子輸送性高分子または/かつ電子輸送性低分子を示すことを特徴とすることが可能である。

[0035]

【発明の実施の形態】以下に、本発明による有機エレクトロルミネッセンス素子について詳細に説明する。

【0036】本発明における有機エレクトロルミネッセンス素子の構成は、陽極と、正孔輸送層と、電子輸送層と、陰極とが順次積層した構成を有する。

【0037】陽極としては、透明絶縁性支持体、例えばガラス基板上に形成された透明な導電性物質が用いられる。陽極の材料としては、酸化錫、酸化インジウム、酸化錫インジウム(ITO)などの導電性酸化物、あるいは金、銀、クロムなどの金属、よう化銅、硫化銅などの無機導電性物質、ポリチオフェン、ポリピロール、ポリアニリン等の導電性ポリマーなどを挙げることができ

40 【0038】陰極が透明な材料で形成されている場合には、陽極は不透明な材料で形成されてもよい。但し、陽極として導電性ポリマーが使用されるときは、以下に示す湿式法による正孔輸送層の形成時に、その導電性ポリマーが湿式法に用いられる溶媒中に溶出しないことが必要である。

【0039】正孔輸送層は、正孔輸送剤を含む。正孔輸送剤は正孔輸送性低分子または正孔輸送性高分子からなる。また、正孔輸送層は、さらにバインダとしての高分子化合物や蛍光物質を含む構成が可能である。

【0040】正孔輸送性低分子として、化学式

に示すN, N'ージフェニル-N, N'ービス (3-メ 10 チルフェニル) -1, 1'ービフェニル-4, 4'ージアミン、(以下TPDともいう)

に示す4, 4'ービス (9-カルバソリル) ビフェニル、

に示すTPAC、 【化23】 12 に示すN, N'ージフェニルーN, N'ービス (1ーナフチル) -1, 1'ービフェニルー4, 4'ージアミ

ファル) ー1, 1 ン、

に示す4, 4' -ビス (10-フェノチアジニル) ビフェニル、

【化21】

に示すカッパーフタロシアニン、 【化22】

30

に示すm-MTDATA、および上記の各化合物の誘導体等からなることが好ましい。

【0041】正孔輸送性高分子として、

【化25】

(-CH₂-CH)

*に示すポリ (Nービニルカルバゾール) (以下PVKともいう)、ポリビニルナフタレン、ポリビニルアントラセン、ポリビニルフェナントレン、ポリビニルピレン、ポリビニルペリレンなどの正孔輸送性高分子からなることが好ましい。

【0042】あるいは、正孔輸送性高分子として、ポリ (パラフェニレン)及びその誘導体、

【化26】

に示すポリ (パラーフェニレンピニレン) 及びその誘導 体などの導電性高分子発光体、または

【化27】

20

10

$$\begin{array}{c} \begin{array}{c} CH_3 \\ CH_2 - C \\ \hline \\ 0 = C \\ \hline \\ HN - \end{array} \\ \begin{array}{c} CH_3 \\ \hline \\ - N - \end{array} \\ \begin{array}{c} CH_3 \\ \hline \\ \end{array}$$

· 30

化学式 [化27] で示される化合物及びその誘導体、

【化28】

化学式 [化28] で示される化合物及びその誘導体、 【化29】

化学式 [化29] で示される化合物及びその誘導体、 【化30】

化学式 [化30] で示される化合物及びその誘導体、 * *【化31】

$$\{ \bigcirc, \bigcirc, \bigcirc, \bigcirc, \bigcirc)$$

化学式 [化31] で示される化合物及びその誘導体、 ※ ※【化32】

$$(0) (0) (0)$$

化学式 [化32] で示される化合物及びその誘導体、 ★ ★【化33】

$$(-\bigcirc)$$
 $(-\bigcirc)$ $(-\bigcirc)$

化学式[化33]で示される化合物及びその誘導体、 ☆ ☆【化34】

化学式[化34]で示される化合物及びその誘導体、

【化35】

化学式 [化35] で示される化合物及びその誘導体、な どの導電性高分子発光体からなることが好ましい。 【0043】蛍光物質は、クマリン1、クマリン2、ク マリン6、クマリン7、クマリン30、クマリン10 2、クマリン106、クマリン334、クマリン33 7、クマリン4、クマリン314、クマリン153、ク マリン3CA、クマリン307、クマリン314T、ク マリン338、クマリン500、クマリン138、クマ リン152、クマリン151、クマリン339、3-(2-ベンゾチアゾリル) -7-(ジブチルアミノ) ク マリン、3-(2-ベンゾチアゾリル)-7-(ジヘプ チルアミノ) クマリン、3-(2-ベンソチアソリル) -7-(ジオクチルアミノ)クマリン、10-(2-ベ ンゾチアゾリル)-2,3,6,7-テトラヒドロー 1, 1, 7, 7ーテトラメチル1H, 5H, 11H-[1] ベンゾピラノ [6, 7, 8-ij] クマリン-1 1-ワンなどクマリン誘導体、

【化36】

に示す(2-(2-(4-(ジメチルアミノ) フェニル) エテニル) -6-メチル-4H-ピラン-4-イリ 40 【化39】 デネ)プロパンジニトリル(以下DCMともいう)、

(2-(2-(4-(ジプロピルアミノ) フェニル) エテニル) -6-メチルー4H-ピラン-4-イリデネ) プロパンジニトリル、(2-(2-(4-(ジブチルアミノ) フェニル) エテニル) -6-メチルー4H-ピラン-4-イリデネ) プロパンジニトリル、(2-(2-(4-(ジオクチルアミノ) フェニル) エテニル) -6-メチルー4H-ピラン-4-イリデネ) プロパンジニトリル、

20 【化37】

$$\begin{array}{c|c} CN & CN \\ \\ H_3C & O \\ \\ O_2 & O \\ \end{array}$$

化学式 [化37], [化38], [化39] で示される *【化40】 化合物などのDCM系化合物、

化学式 [化40], [化41] で示される化合物、ナイ ルレッドなどの色素類、5,6,11,12-テトラフ ェニルナフタセン (以下ルブレンともいう)、キナクリ ドン、アントラセン、アミン系などの芳香族アミン、芳 香族イミンの誘導体、

【化42】

に示す1, 1, 4, 4ーテトラフェニルー1, 3ープタ ジエン(以下TPBともいう)、1-(9-アントラセ ニル) -4-フェニル-1、3-ブタジエン、1-(4 ーキノリル) -4- (P-ジメチルアミノ) フェニルー 1, 3-ブタジエンなどのブタジエン誘導体、アクリジ ンの誘導体、4,4'ービス(5-メチルー2-ベンゾ 40 オキサゾリル)スチルベンなどのスチルベンの誘導体、 1, 3-イソベンゾフランなどのイソベンゾフランの誘 導体、1、3-ジピレニルプロパンなどのエキサイマー あるいはエキサイプレックス発光を示す化合物、7-(p-メトキシベンジルアミノ) -4-ニトロベンゾオ キサジアソールなどのベンゾオキサジアソール誘導体、 オキサゾール、オキサジアゾール、ベンゾイミダゾー ル、チアゾール誘導体などの蛍光増白剤、8-ヒドロキ シキノリンおよびその誘導体の金属錯体、ルテニウム錯 体、希土類錯体、ベンゾイルトリフルオロアセトン、フ 50

ロイルトリフルオロアセトン、ヘキサフルオロアセトン のユーロビウム錯体に代表されるような蛍光性の金属錯 体、希土類錯体、あるいはピコリン酸テルビウムなどの 希土類塩などをあげることができる。

【0044】また、バインダとしての高分子化合物の例 として、ポリスチレン、ポリビニルビフェニル、ポリビ ニルフェナントレン、ポリビニルアントラセン、ポリビ ニルペリレン、ポリ (エチレンー coービニルアセテー 20 ト)、ポリブタジエンのcisとtrans、ポリ (2-ビニル ナフタレン)、ポリビニルピロリドン、ポリスチレン、 ポリ (メチルメタクリレート)、ポリ (ビニルアセテー ト)、ポリ(2-ビニルピリジン-co-スチレン)、 ポリアセナフチレン、ポリ (アクリロニトリルーco-ブタジエン)、ポリ(ベンジルメタクリレート)、ポリ (ビニルトルエン)、ポリ (スチレンーco-アクリロ ニトリル)、ポリ(4-ビニルビフェニル)、ポリエチ レングリコールなどが挙げられる。

【0045】電子輸送層は、電子輸送剤を含む。電子輸 30 送剤として、電子輸送性高分子の繰り返し単位中に、1 以上5以下のアルキル基、またはアルコキシル基を含む 化合物であって、正孔輸送層に含まれる有機物を溶解し ない溶媒に溶解するものである。

【0046】具体的な例として、一般式[化1]、[化 12]、[化15]、[化16]で表される化合物があ げられる。

【0047】また、電子輸送剤として、電子輸送性低分 子をさらに含む構成が可能である。さらに、電子輸送層 は、上記の蛍光物質を含む構成が可能である。

【0048】電子輸送性低分子の例として、 【化43】

[化43] に示すトリス(8-ヒドロキシキノリナート) アルミニウム、(以下Alq3ともいう)

[化44] に示す3-(4-ビフェニリル)-5-(4-tert-ブチルフェニル)-4-フェニルー1,2,4-トリアゾール(以下、TAZともいう)、【化45】

[化45] に示す2-(4-ビフェニリル)-5-(4 液を用ったertープチルフェニル)-1,3,4-オキサジ 30 する。アゾール、(以下PBDともいう)

[化46] に示す4, 4'ーピス(1, 1ージフェニル 40 エテニル) ピフェニル (以下にDPVBiともいう)、 【化47】

[化47] に示す2, 5-ビス (1-ナフチル) -1.3. 4-オキサジアゾール (以下にBNDともいう)

22

[化48] に示される4, 4'-ビス (1, 1-ビス (4-メチルフェニル) エテニル) ビフェニル (以下D TVB i とも言う) 、

[化49] に示される2,5-ビス(4-ビフェニリル)-1,3,4-オキサジアゾール(以下BBDとも20 いう)などを挙げることができる。

【0049】次に、本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法について説明する。

【0050】まず、基板となる透明絶縁性支持体、例えばガラス基板上に陽極を蒸着法にて形成する。

【0051】次に、正孔輸送性高分子または正孔輸送性低分子を第1の溶媒中に溶解または分散した第1の溶液を作成する。ここで、第1の溶液に、さらにバインダ高分子を溶解することも可能である。次に、その第1の溶液を用いた湿式法によって、陽極上に正孔輸送層を形成する。

【0052】次に、[化1]、[化12]、[化13] または[化14]の一般式で表される化合物のうち少なくとも1種を、第2の溶媒中に溶解した第2の溶液を作成する。ここで、第2の溶液に、さらに電子輸送性低分子を溶解または分散することも可能である。その第2の溶液を用いた湿式法によって、正孔輸送層上に電子輸送層を形成する。

【0053】ここで、第2の溶媒の溶解度パラメーターは、電子輸送層の成膜温度において、正孔輸送層に含まれる有機物(正孔輸送性高分子または正孔輸送性低分子など)に対して可溶範囲外を示す値を有する。このような第2の溶媒を用いた、湿式法による電子輸送層の形成において、下層の正孔輸送層に含まれる有機物を溶解することがない。

【0054】ここで、溶解度パラメーターは、以下の式で表される。

 $SP = \{ (\Delta H - RT) / V \}^{1/2}$

ここで、SPは溶解度パラメーター(単位:(cal/cm³) ^{1/2})であり、ΔHは蒸発熱(単位:cal/mol)であり、

50 Rは気体定数 (単位: cal/(mol·K)) であり、Tは絶対

温度(単位: K) であり、Vはモル体積(単位: cm³/mo 1) である。

【0055】例えば、正孔輸送層に含まれる有機物が正 孔輸送性高分子であるポリ(N-ビ=ルカルバゾール)の時、このポリ(N-U=ルカルバゾール)の可容範囲を示す溶解度パラメーターは、室温において、8.8 (c al/cm³) $^{1/2}$ より大きく、かつ10.1 (cal/cm³) $^{1/2}$ より大きく、かつ10.1 (cal/cm³) $^{1/2}$ 未満である。従って、第2の溶媒として、この溶解度パラメーターの範囲外にある溶媒を用いると、正孔輸送層に含まれるポリ(N-U=ルカルバゾール)を溶解することなく電子輸送層を形成することができる。このような溶媒の例として、エチルベンゼン(室温における溶解度パラメーターが8.8 (cal/cm³) $^{1/2}$)、 $^{1/2}$)、 $^{1/2}$)、 $^{1/2}$)、 $^{1/2}$)、 $^{1/2}$)、 $^{1/2}$ などが挙げられる。

【0056】上記の製造過程で用いられた第1または第2の溶媒は自然乾燥によって蒸発することを利用して、正孔輸送層と電子輸送層の各々は形成される。加熱、紫外線の照射による重合、硬化等の処理は行う必要がない。従って、製造工程が簡単であり、生産効率を向上させることができる。

【0057】本発明で使用される湿式法には、たとえばキャスティング法、ブレードコート法、浸漬塗工法、スピンコート法、スプレイコート法、ロール塗工法、インクジェット塗工法などの通常の塗工法が含まれる。

【0058】最後に、電子輸送層上に、蒸着法などを用いて陰極を形成し、本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子が得られる。

【0059】電子輸送層の形成に使用される第2の溶媒 として、前記電子輸送層の成膜温度における前記正孔輸 送層中の有機物の溶解度パラメーターの可溶範囲外の溶 解度パラメーターを有する溶媒で、かつ室温におけるそ の溶媒中への水の溶解度が2重量%以下である溶媒が用 いられる。これにより、第2の溶媒は電子輸送層を成膜 した時に、溶媒溶液中の水分が残留して、正孔輸送層と 電子輸送層の界面にボイドが発生したり、発光特性を劣 化させる事が無くなる。ここで第2の溶媒は、2種類以 上の溶媒からなる混合溶媒でも良く、αークロロナフタ レン、2, 2-ジメチルブタン、2, 4-ジメチルペン 40 タン、2-メチルヘキサン、3-メチルヘキサン、2, 2, 4-トリメチルペンタン、2-メチルブタン、2, 2、5-トリメチルヘキサン、1, 1, 2-トリクロロ -1, 2, 2-トリフルオロエタン、1-ペンテン、 2, 2, 3ートリメチルペンタン、2ーメチルペンタ ン、nーペンタン、trans-2-ペンテン、1-ヘ キセン、cis-2-ペンテン、2-クロロ-2-メチ ルプロパン、1, 1, 2, 2ーテトラクロロー1, 2-ジフルオロエタン、1-ヘプテン、ヘキサン、n-オク タン、1-オクテン、ヘプタン、n-ノナン、1-ノネ

ン、nーデカン、1-クロロペンタン、1ーデセン、2. ークロロブタン、ベンゾトリフルオリド、メチルシクロ ヘキサン、メチルシクロペンタン、2-クロロプロパ ン、メシチレン、1-クロロブタン、エチルシクロヘキ サン、pーキシレン、mーキシレン、2ーブロモプロパ ン、シクロヘキセン、シクロペンタン、1-クロロプロ パン、シクロヘキサン、2,3-ジメチルブタン、o-キシレン、テトラクロロメタン、ヘキサフルオロベンゼ ン、ペンタクロロエタン、1-クロロー2-メチルプロ パン、1, 1-ジクロロエチレン、1, 1, 1, 2-テ トラクロロエタン、1,1,1ートリクロロエタン、1 ープロモプロパン、クメン、pークロロトルエン、ジエ チルスルファイド、oークロロトルエン、pージクロロ ベンゼン、1, 1-ジクロロエタン、テトラクロロエチ レン、m-ジクロロベンゼン、p-ジエチルベンゼン、 m-ジエチルベンゼン、エチルベンゼン、トリクロロエ チレン、3-クロロプロペン、o-ジエチルベンゼン、 o -ジクロロベンゼン、プロモエタン、トルエン、クロ ロベンゼン、トリクロロメタン、フルオロベンゼン、

24

1,2-ジクロロエチレン(trans)、1,1,2,2-デトラクロロエタン、1.2-ジクロロプロパン、スチレン、イソプチロニトリル、1,2-ジクロロエチレン(cis)、1-ブロモー2-クロロエタン、1,2-ジクロロエタン、ヘキサクロロエチレン、1,2-ジブロモエタン、1,1,2-トリクロロエタン、ジクロロメタン、バレロニトリル、チオフェン、カーボンジスルファイド、クロロプロモメタン、ブロモベンゼン、2-ニトロプロパン、1-ニトロプロパン、ベンゾニトリル、ニトロエタン等及び、これらの混合溶媒が挙げられる。

【0060】これらの溶媒のうち、正孔輸送層がポリ (N-ビニルカルバゾール) からなるときに、第2の溶 媒は、室温において、8.8 (cal/cm^3) 1/2以下また は10.1 (cal/cm^3) 1/2以上の溶解度パラメーター を有し、ケトン、エステル、エーテル、アルコール、カ ルボン酸、アミン、アルデヒド類などの水素結合の強い 溶媒を除く炭化水素、ハロゲン化炭化水素、ニトロ化炭 化水素、ニトリル類等の水素結合の弱い溶媒である事が 望ましい。ここで第2の溶媒は、2種類以上の溶媒から なる混合溶媒でも良く、αークロロナフタレン、2, 2 ージメチルブタン、2,4-ジメチルペンタン、2-メ チルヘキサン、3-メチルヘキサン、2,2,4-トリ メチルペンタン、2ーメチルブタン、2,2、5ートリ メチルヘキサン、1, 1, 2-トリクロロー1, 2, 2 ートリフルオロエタン、1ーペンテン、2,2,3ート リメチルペンタン、2-メチルペンタン、n-ペンタ ン、trans-2-ペンテン、1-ヘキセン、cis -2-ペンテン、2-クロロ-2-メチルプロパン、 50 1, 1, 2, 2-テトラクロロー1, 2-ジフルオロエ

タン、1-ヘプテン、ヘキサン、n-オクタン、1-オ クテン、ヘプタン、n-ノナン、1-ノネン、n-デカ ン、1-クロロペンタン、1-デセン、2-クロロブタ ン、ベンゾトリフルオリド、メチルシクロヘキサン、メ チルシクロペンタン、2ークロロプロパン、メシチレ ン、1-クロロブタン、エチルシクロヘキサン、p-キ シレン、m-キシレン、2-ブロモプロパン、シクロへ キセン、シクロペンタン、1-クロロプロパン、シクロ ヘキサン、2, 3-ジメチルブタン、o-キシレン、テ トラクロロメタン、ヘキサフルオロベンゼン、ペンタク ロロエタン、1-クロロ-2-メチルプロパン、1、1 ージクロロエチレン、1, 1, 1, 2ーテトラクロロエ タン、1, 1, 1ートリクロロエタン、1ープロモプロ パン、クメン、pークロロトルエン、ジエチルスルファ イド、oークロロトルエン、pージクロロベンゼン、 1, 1-ジクロロエタン、テトラクロロエチレン、m-ジクロロベンゼン、pージエチルベンゼン、mージエチ ルベンゼン、エチルベンゼン、2-ニトロプロパン、1 ーニトロプロパン、ベンゾニトリル、ニトロエタン等及 び、これらの混合溶媒が望ましい。

【0061】また、上記の溶媒のうち、電子輸送層を成膜した時に、溶媒溶液中の水分が残留して、正孔輸送層と電子輸送層の界面にボイドが発生したり、発光特性を劣化させる事を無くするために、その溶媒中への水の溶解度が1重量%以下であることがさらに望ましい。

【0062】以下に、発明者による実験例を示す。電子輸送性高分子が所定の溶解度パラメーターを有する溶媒に対する可溶性を調べた。ここで用いた溶媒は、エチルベンゼン(常温での可溶溶解度パラメーターが、8.8 (cal/cm³) 1/2を示す)であり、正孔輸送層がポリ(Nービニルカルバゾール) (常温での可溶溶解度パラメーターの下限が、8.8 (cal/cm³) 1/2、上限が10.1 (cal/cm³) 1/2を示す)からなる時に、そのポ *

*リ (N-ビニルカルバゾール)を溶解しないものである。

【0063】 [実験例1] 化学式 [化50]

【化50】

10 で表される化合物において、常温での可溶溶解度パラメーターの下限が、8.8 (cal/cm^3) $^{1/2}$ 、上限が10.1 (cal/cm^3) $^{1/2}$ を示す。この化合物はエチルベンゼンに不溶であった。

【0064】[実験例2] 化学式[化51]

【化51】

$$\left(\circ \left(\sum_{C_2 H_5} \right)^{N-N} \left(\sum_{C_2 H_5} \right)^{-1} \right)$$

で表される化合物において、常温での可溶溶解度パラメーターの下限が、8.2 (cal/cm^3) $^{1/2}$ 、上限が1 1.1 (cal/cm^3) $^{1/2}$ を示す。この化合物はエチルベンゼン中に溶解した。ここで、[化51]で表される化合物は、[化50]で表される化合物の繰り返し単位中にアルキル基、またはアルコキシル基からなる側鎖を1以上5以下含むものであり、本発明に用いられる電子輸送性高分子を示す。

30 【0065】[実験例3] 化学式[化52] 【化52】

で表される化合物において、常温での可溶溶解度パラメーターの下限が、8.2 (cal/cm^3) $^{1/2}$ 、上限が11.1 (cal/cm^3) $^{1/2}$ を示す。この化合物はエチルベンゼン中に溶解した。ここで、[化52]で表される化合物は、[化50]で表される化合物の繰り返し単位中にアルキル基、またはアルコキシル基からなる側鎖を1以上5以下含むものであり、本発明に用いられる電子輸送性高分子を示す。

【0066】[実験例4] 化学式[化53] 【化53】

で表される化合物において、常温での可溶溶解度パラメーターの下限が、8.8 (cal/cm^3) $^{1/2}$ 、上限が10.1 (cal/cm^3) $^{1/2}$ を示す。この化合物はエチルベ50 ンゼンに不溶であった。

【0067】[実験例5] 化学式[化54]

【化54】

*で表される化合物において、常温での可溶溶解度パラメ

ーターの下限が、8.2 (cal/cm^3) 1/2、上限が1 1.1 (cal/cm^3) 1/2を示す。この化合物はエチルベンゼン中に溶解した。ここで、 [化54] で表される化合物は、 [化53] で表される化合物の繰り返し単位中にアルキル基、またはアルコキシル基からなる側鎖を1以上5以下含むものであり、本発明に用いられる電子輸送性高分子を示す。

【0068】[実験例6]

10 化学式 [化55]

$$\left(\circ \left(\bigcirc \right) \right) \left(\bigcirc \left(\bigcirc \right) \left(\bigcirc \left(\bigcirc \right) \left(\bigcirc \left(\bigcirc \right) \left(\bigcirc \left(\bigcirc \right) \left(\bigcirc \right) \left(\bigcirc \right) \left(\bigcirc \left(\bigcirc \right) \left(\bigcirc \right) \left(\bigcirc \right) \left(\bigcirc \left(\bigcirc \right) \left(\bigcirc \left(\bigcirc \right) \left(\bigcirc \right) \left(\bigcirc \left(\bigcirc \right) \left(\bigcirc \left(\bigcirc \right) \left($$

で表される化合物において、常温での可溶溶解度パラメーターの下限が、8.9 (cal/cm³) $^{1/2}$ 、上限が10.1 (cal/cm³) $^{1/2}$ を示す。この化合物はエチルベンゼンに不溶であった。

※【0069】[実験例7]
化学式[化56]

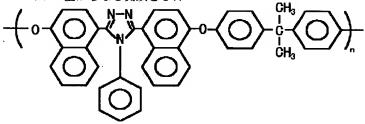
20 【化56】

 $\begin{array}{c|c}
+ & & & \\
\hline
+ & & & \\
+ & & & \\
\hline
+ & & & \\
+ & & & \\
+ & & & \\
+ & & & \\
+ & & & \\
+ & & & \\
+ & & & \\
+ & & & \\
+ & & & \\
+ & & & \\
+ & & & \\
+ & & & \\
+ & & & \\
+ & & & \\
+ & & & \\
+ & & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & & \\
+ & &$

で表される化合物において、常温での可溶溶解度パラメーターの下限が、8.6 (cal/cm^3) $^{1/2}$ 、上限が1 1.1 (cal/cm^3) $^{1/2}$ を示す。この化合物はエチルベンゼン中に溶解した。ここで、 [化56] で表される化合物は、 [化55] で表される化合物の繰り返し単位中にアルキル基、またはアルコキシル基からなる側鎖を1 \star

★以上5以下含むものであり、本発明に用いられる電子輸 30 送性高分子を示す。

【0070】 [実験例8] 化学式 [化57] 【化57】



で表される化合物において、常温での可溶溶解度パラメーターの下限が、8.9 (cal/cm³) $^{1/2}$ 、上限が10.1 (cal/cm³) $^{1/2}$ を示す。この化合物はエチルベンゼンに不溶であった。

【0071】[実験例9] 化学式[化58] 【化58】

で表される化合物において、常温での可溶溶解度パラメーターの下限が、8.6 (cal/cm³) $^{1/2}$ 、上限が1 1.1 (cal/cm³) $^{1/2}$ を示す。この化合物はエチルベンゼン中に溶解した。ここで、 [化58] で表される化合物は、 [化57] で表される化合物の繰り返し単位中にアルキル基、またはアルコキシル基からなる側鎖を1*

*以上5以下含むものであり、本発明に用いられる電子輸 10 送性高分子を示す。

【0072】 [実験例10] 化学式 [化59] 【化59】

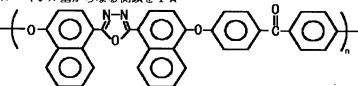
で表される化合物において、常温での可溶溶解度パラメーターの下限が、8.8 (cal/cm³) $^{1/2}$ 、上限が10.1 (cal/cm³) $^{1/2}$ を示す。この化合物はエチルベンゼンに不溶であった。

※【0073】[実験例11] 化学式[化60] 【化60】

で表される化合物において、常温での可溶溶解度パラメーターの下限が、8.2 (cal/cm^3) $^{1/2}$ 、上限が 1 1.1 (cal/cm^3) $^{1/2}$ を示す。この化合物はエチルベンゼン中に溶解した。ここで、 [化 6 0] で表される化合物は、 [化 5 9] で表される化合物の繰り返し単位中にアルキル基、またはアルコキシル基からなる側鎖を 1 \star

★以上5以下含むものであり、本発明に用いられる電子輸送性高分子を示す。

【0074】 [実験例12] 化学式 [化61] 【化61】



で表される化合物において、常温での可溶溶解度パラメーターの下限が、8.9 (cal/cm³) $^{1/2}$ 、上限が10.1 (cal/cm³) $^{1/2}$ を示す。この化合物はエチルベンゼンに不溶であった。

【0075】[実験例13] 化学式[化62] 【化62】

で表される化合物において、常温での可溶溶解度パラメーターの下限が、8.6 $(cal/cm^3)^{1/2}$ 、上限が 1 1.1 $(cal/cm^3)^{1/2}$ を示す。この化合物はエチルベンゼン中に溶解した。ここで、 [化 6 2] で表される化合物は、 [化 6 1] で表される化合物の繰り返し単位中にアルキル基、またはアルコキシル基からなる側鎖を 1以上 5以下含むものであり、本発明に用いられる電子輸送性高分子を示す。

【0076】[実験例14]

化学式[化63]

【化63】

で表される化合物において、常温での可溶溶解度パラメーターの下限が、8.9 $(cal/cm^3)^{1/2}$ 、上限が10.1 $(cal/cm^3)^{1/2}$ を示す。この化合物はエチルベンゼンに不溶であった。

【0077】[実験例15]

化学式[化64]

【化64】

で表される化合物において、常温での可溶溶解度パラメーターの下限が、8.6(cal/cm³)^{1/2}、上限が1

1.1 (cal/cm³) ^{1/2}を示す。この化合物はエチルベンゼン中に溶解した。ここで、[化64] で表される化
 合物は、[化63] で表される化合物の繰り返し単位中にアルキル基、またはアルコキシル基からなる側鎖を1以上5以下含むものであり、本発明に用いられる電子輸送性高分子を示す。

【0078】[実験例16] 化学式[化65]

【化65】

で表される化合物において、常温での可溶溶解度パラメ30 ーターの下限が、8.6 (cal/cm³) 1/2、上限が11.1 (cal/cm³) 1/2を示す。この化合物はエチルベンゼン中に溶解した。ここで、[化65]で表される化合物は、[化63]で表される化合物の繰り返し単位中にアルキル基、またはアルコキシル基からなる側鎖を1以上5以下含むものであり、本発明に用いられる電子輸送性高分子を示す。

【0079】[実験例17] 化学式[化66]

【化66】

20

30

で表される化合物において、常温での可溶溶解度パラメーターの下限が、8.9 (cal/cm³) $^{1/2}$ 、上限が10. 1 (cal/cm³) $^{1/2}$ を示す。この化合物はエチルベンゼンに不溶であった。

【0080】[実験例18] 化学式[化67]

【化67】

で表される化合物において、常温での可溶溶解度パラメーターの下限が、8.6 (cal/cm³) 1/2、上限が1
1.1 (cal/cm³) 1/2を示す。この化合物はエチルベンゼン中に溶解した。ここで、[化67]で表される化合物は、[化66]で表される化合物の繰り返し単位中 40にアルキル基、またはアルコキシル基からなる側鎖を1以上5以下含むものであり、本発明に用いられる電子輸送性高分子を示す。

【0081】[実験例19] 化学式[化68]

【化68】

で表される化合物において、常温での可溶溶解度パラメーターの下限が、8.9 (cal/cm³) $^{1/2}$ 、上限が10.1 (cal/cm³) $^{1/2}$ を示す。この化合物はエチルベンゼンに不溶であった。

【0082】[実験例20]

化学式 [化69]

【化69】

$$\begin{array}{c|c} & & & \\ \hline \\ & & \\ \\ & & \\ \hline \\ & & \\ \\ & & \\ \hline \\ & & \\ \\ & & \\ \hline \\ & & \\ \\ & & \\ \hline \\ & & \\ \\ & & \\ \hline \\ & & \\ \\ & & \\ \hline \\ & & \\ \\ & & \\ \hline \\ & & \\ \\ & & \\ \\ & & \\ \hline \\ & & \\ \\ & & \\ \\ & & \\ \\ & & \\ \hline \\ & & \\ \\ & \\ \\ & & \\ \\ & & \\ \\ & & \\ \\ & \\ \\ & & \\ \\ & & \\ \\ & & \\ \\ & & \\$$

で表される化合物において、常温での可溶溶解度パラメーターの下限が、8.6 (cal/cm^3) $^{1/2}$ 、上限が11.1 (cal/cm^3) $^{1/2}$ を示す。この化合物はエチルベンゼン中に溶解した。ここで、[化69]で表される化合物は、[化68]で表される化合物の繰り返し単位中にアルキル基、またはアルコキシル基からなる側鎖を1以上5以下含むものであり、本発明に用いられる電子輸送性高分子を示す。

【0083】[実験例21]

化学式[化70]

【化70】

35 GH₂-GH N N N

で表される化合物において、常温での可溶溶解度パラメーターの下限が、8.9 $(cal/cm^3)^{1/2}$ 、上限が10.1 $(cal/cm^3)^{1/2}$ を示す。この化合物はエチルベンゼンに不溶であった。

【0084】[実験例22] 化学式[化71]

【化71】

で表される化合物において、常温での可溶溶解度パラメーターの下限が、8.6 (cal/cm^3) $^{1/2}$ 、上限が11.1 (cal/cm^3) $^{1/2}$ を示す。この化合物はエチルベンゼン中に溶解した。ここで、[化71]で表される化合物は、[化70]で表される化合物の繰り返し単位中にアルキル基、またはアルコキシル基からなる側鎖を1以上5以下含むものであり、本発明に用いられる電子輸送性高分子を示す。

【0085】また、上記に示す、[実験例2]、[実験例3]、[実験例5]、[実験例7]、[実験例9]、 [実験例11]、[実験例13]、[実験例15]、 [実験例16]、[実験例18]、[実験例20]、 [実験例22]において用いた化合物は、本発明に用い られる電子輸送性高分子であり、エチルベンゼン溶媒中 に溶解した。 【0086】上記の各実験例に対応するエチルベンゼン 溶媒を利用して、以下に示す有機エレクトロルミネッセ ンス素子を作成した。

【0087】最初に、ガラス基板のような透明基板上に 陽極が蒸着される。次に、正孔輸送層用の正孔輸送性有機物としてポリ (Nービニルカルバゾール) (PVK)が第1の溶媒中に溶解される。その第1の溶媒溶液から 湿式法により陽極上に正孔輸送層が形成される。次に、第2の溶媒として上記のエチルベンゼン溶媒を用いて、10 湿式法により正孔輸送層の上に電子輸送層が形成される。この時、エチルベンゼン溶媒には、ドーピング発光材料として、クマリン6が溶解または分散されており、電子輸送層中にドーピング発光材料を有する。その後、陰極が蒸着法により形成され、有機エレクトロルミネッセンス素子を作成する。

【0088】この時作成された各有機エレクトロルミネ ッセンス素子に対して、発光特性を調べるために、電流 密度10mA/cm²時の輝度を測定すると、[実験例2]で 用いた、化学式[化51]で表される化合物を電子輸送 20 層に用いた素子では、輝度160cd/m²、 [実験例3] で用いた、化学式[化52]で表される化合物を電子輸 送層に用いた素子では、輝度170cd/m²、 [実験例 5] で用いた、化学式[化54] で表される化合物を電 子輸送層に用いた素子では、輝度、 $200 \, \text{cd/m}^2$ 、[実 験例7]で用いた、化学式[化56]で表される化合物 を電子輸送層に用いた素子では、輝度220cd/m²、 [実験例9]で用いた、化学式[化58]で表される化 合物を電子輸送層に用いた素子では、輝度160cd/ \mathbf{m}^2 、 [実験例11] で用いた、化学式 [化60] で表さ 30 れる化合物を電子輸送層に用いた素子では、輝度240 cd/m²、[実験例13]で用いた、化学式[化62]で 表される化合物を電子輸送層に用いた素子では、輝度2 $30 \, \text{cd/m}^2$ 、[実験例15] で用いた、化学式[化64] で表される化合物を電子輸送層に用いた素子では、 輝度 190cd/m^2 、[実験例16] で用いた、化学式 [化65]で表される化合物を電子輸送層に用いた素子 では、輝度220cd/m²、 [実験例18] で用いた、化 学式[化67]で表される化合物を電子輸送層に用いた 素子では、輝度180cd/n²、[実験例20]で用い た、化学式[化69]で表される化合物を電子輸送層に 用いた素子では、輝度 2 4 0 cd/m²、 [実験例 2 2] で 用いた、化学式[化71]で表される化合物を電子輸送 層に用いた素子では、輝度240 cd/m^2 、を示した。

【0089】上記の結果より、本発明において、電子輸送性高分子を、積層構造を有し、電子輸送層が湿式法で形成される有機エレクトロルミネッセンス素子に用いることが可能となった。

[0090]

【発明の効果】以上説明したように、有機エレクトロル 0 ミネッセンス素子の電子輸送層を構成する電子輸送性高

分子において、その溶解度パラメーターに対する可溶範 囲を、従来と比べて拡げることが可能となり、正孔輸送 層を構成する正孔輸送性有機物の溶解度パラメーターに 対する可溶範囲にない溶媒に対して可溶性を有すること が可能となった。

【0091】このことから、本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子によれば、上層の電子輸送層の形成には、電子輸送性高分子の溶解度パラメーターに対する可溶範囲にあって、下層の正孔輸送層を構成する正孔輸送性有機物の溶解度パラメーターに対する可溶範囲にない

溶媒を使用した湿式法を用いることが可能となり、下層 の正孔輸送層が溶出することがなく、高い輝度を持つ高 品質の有機エレクトロルミネッセンス素子を提供するこ とができる。

38

【0092】また、下層の正孔輸送層及び上層の電子輸送層が、湿式法により形成されており、下層の正孔輸送層及び上層の電子輸送層に対する、加熱、紫外線の照射による重合、硬化等の処理を行う必要がないために、高い生産効率で高い輝度を持つ高品質の有機エレクトロル10 ミネッセンス素子を製造することができる。

フロントページの続き

(72)発明者 島田 陽一

埼玉県狭山市新狭山1丁目10番地1 ホン ダエンジニアリング株式会社内 F ターム(参考) 3K007 AB00 AB02 AB03 AB18 CA01 CB01 DA00 DB03 EB00 FA01 FA03